

EP 0 907 215 A1

#### SEAL FOR A HIGH TEMPERATURE FUEL CELL OR A HIGH TEMPERATURE FUEL CELL PILE

Abstract: A high temperature fuel cell (2) has two construction elements (4,6) that in a joining area (12) is brought together through a layer (10; 10a; 10b; 10c), and at least one part (14; 22; 24, 26; 30, 32, 34) is formed from glass solder and at least another part (16; 18, 20; 28; 36, 38) is formed from Glass ceramic. Through this measure is a mechanically and chemically stable structural part formed that is also economical.

DE 43 24 181 A1

#### HIGH TEMPERATURE FUEL CELL, FUEL CELL CONSTRUCTION AND PROCESS TO MANUFACTURE THE SAME

Abstract: The invention pertains to a high temperature fuel cell with a solid electrolyte (3) which has two electrodes (32, 33) and the solid electrolyte is between fixed electrodes (31) and a gap is between the two separation elements (2, 4, 5). In the gap (8) is a passage (83, 84) for reaction gas. The seal (7) will at attach least one of the electrodes (32, 33) against the passage (83, 84) and/or the other electrode (33, 32) so that a substantially unfettered passage of the seal (7) between the separation elements (2, 4, 5) and the solid electrolyte (3) is formed. Preferably a seal is applied that is viscous at the application temperature, so that the fuel cell construction has the advantage that an especially good seal of the reaction gas of the high temperature fuel cell is realized.

DE 198 32 838 A1

#### SOLID ELECTROLYTE FUEL CELL

Abstract: A solid electrolyte fuel cell pile includes three layer films and separators that are alternately arranged. Each of the three layer films includes a solid electrolyte film, a fuel cell electrode and an air electrode, wherein the solid electrolyte film is between the fuel electrode and the air electrode. The three layer film and the separator is separated by a glass blue and a ceramic glue that adhere to each other.

①9 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**  
⑩ **DE 198 32 838 A 1**

⑤1 Int. Cl.<sup>6</sup>:  
**H 01 M 8/10**  
C 04 B 37/00

⑲ Aktenzeichen: 198 32 838.9  
⑳ Anmeldetag: 21. 7. 98  
㉑ Offenlegungstag: 25. 2. 99

③0 Unionspriorität:  
9-225062 21. 08. 97 JP  
⑦1 Anmelder:  
Murata Mfg. Co., Ltd., Nagaokakyo, Kyoto, JP  
⑦4 Vertreter:  
Rechts- und Patentanwälte Lorenz Seidler Gossel,  
80538 München

⑦2 Erfinder:  
Shiratori, Akira, Nagaokakyo, Kyoto, JP; Iha,  
Michiaki, Nagaokakyo, Kyoto, JP; Takagi, Hiroshi,  
Nagaokakyo, Kyoto, JP

**Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen**

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤4 Festelektrolyt-Brennstoffzelle

⑤7 Ein Festelektrolyt-Brennstoffzellenstapel umfaßt dreischichtige Filme und Separatoren, die alternierend aufeinander gestapelt sind. Jeder der dreischichtigen Filme umfaßt einen Festelektrolytfilm, eine Brennstoffelektrode und eine Luftelektrode, wobei der Festelektrolytfilm zwischen der Brennstoffelektrode und der Luftelektrode liegt. Der dreischichtige Film und der Separator sind mit einem getrennt dazwischen aufgetragenen Glas-Klebstoff und einem Keramik-Klebstoff miteinander verklebt.

DE 198 32 838 A 1

DE 198 32 838 A 1

Die vorliegende Erfindung betrifft Festelektrolyt-Brennstoffzellen.

Eine Festelektrolyt-Brennstoffzelle wandelt in Brennstoff enthaltenes chemisches Potential direkt in elektrische Energie mittels einer elektrochemischen Einrichtung bzw. Methode um.

Die Fig. 1 ist eine Schnittansicht eines Zellenstapels einer Festelektrolyt-Brennstoffzelle, in welcher zum Beispiel drei Zellen aufeinandergestapelt sind.

Die Zelle 1a ist eine Minimaleinheit zur Erzeugung von Elektrizität durch die Reaktion des Festelektrolyt-Brennstoffs und schließt einen dreischichtigen Film 2a als einen Erzeugungsbereich und ein Paar von Separatoren 3a und 3b ein, welche den dreischichtigen Film 2a von beiden Seiten sandwichartig einschließen. Der dreischichtige Film 2a schließt eine Luftelektrode 4a, einen Festelektrodenfilm 5a und eine Brennstoffelektrode 6a ein. Ein Stapel, der eine Vielzahl von Zellen 1a einschließt, wird als Zellenstapel 7a bezeichnet.

Der Festelektrodenfilm 5a ist rechteckig, und als Material für diesen wird zum Beispiel Yttriumstabilisierte Zirkonerde (YSZ) verwendet. Als Material für die Luftelektrode 4a wird zum Beispiel Lanthanmanganit ( $\text{LaMnO}_3$ ) verwendet, und als Material für die Brennstoffelektrode 6a wird zum Beispiel ein Cermet einschließlich Nickel (Ni) und Yttriumstabilisierte Zirkonerde (YSZ) verwendet.

Für die Separatoren 3a und 3b wird zum Beispiel Lanthanchromit ( $\text{LaCrO}_3$ ) verwendet. Luft wird in die Luftelektrode 4a des dreischichtigen Films 2a durch eine als Gaskanal fungierende Furche 8a zugeführt, und Brennstoffgas wird in die Brennstoffelektrode 6a durch die als Gaskanal fungierende Furche 8b zugeführt. Die benachbarten Zellen 1a sind elektrisch miteinander verbunden. In der in Fig. 1 gezeigten Zelle 1a strömen Luft und Brennstoffgas auf jeder Oberfläche des dreischichtigen Films 2a.

Die Fig. 2 zeigt ein weiteres Beispiel einer Festelektrolyt-Brennstoffzelle. In Fig. 2 ist ein Separator 3c mit der Seite einer Luftelektrode (nicht gezeigt in der Zeichnung) eines dreischichtigen Films 2b verbunden, welcher die Luftelektrode, einen Festelektrolytfilm und eine Brennstoffelektrode unter Bildung der Zelle 1b einschließt. Eine Vielzahl der Zellen 1b sind aufeinandergestapelt, und eine leitfähige Filzschicht 14, die mit einem Brennstoffgaskanal ausgestattet ist, wird zwischen eine Brennstoffzelle (nicht in der Zeichnung gezeigt) einer Zelle 1b und einen Separator 3c einer weiteren Zelle 1b, die auf der Brennstoffzelle liegt, eingefügt. In einer solchen Zelle wird Luft in den Separator 3c zugeführt bzw. eingespeist, welcher mit der Luftelektrode des dreischichtigen Films 2b verbunden ist, und Brennstoffgas wird in die leitfähige Filzschicht 14 auf der Seite der Brennstoffzelle eingeführt. Die Brennstoffelektrode der Zelle 1b und der Separator 3c, der auf der Brennstoffelektrode 14 liegt, werden elektrisch durch die leitfähige Filzschicht 14 verbunden, und somit wird ein Zellenstapel 7b gebildet. Ein aus Glas oder einem Verbundmaterial bestehendes Abdichtungsmittel, das zum Beispiel Keramik und Glas einschließt, wird für die Peripherien des Separators 3c und für die Außenseiten der leitfähigen Filzschicht 14 entlang des Brennstoffgaskanals verwendet. Das Abdichtungsmittel verhindert auch, daß das Brennstoffgas aus der Brennstoffzelle austritt bzw. leckt.

Ein Vorteil einer solchen Festelektrolyt-Brennstoffzelle vom Flachtyp ist ein hoher Output pro Volumeneinheit. Durch Verringerung der Dicke des dreischichtigen Films kann die Zahl der Zellen pro Dickenheit erhöht werden, und da auch elektrischer Strom senkrecht zu der Zellebene fließt, kann der Innenwiderstand verringert werden.

Die Struktur der obenstehend beschriebenen Festelektrolyt-Brennstoffzelle erfordert, daß es zu keinem Lecken von Gas kommt, wo der dreischichtige Film und der Separator miteinander verbunden sind, so daß die zugeführte Luft und das zugeführte Brennstoffgas sich nicht vermischen. Für den Zweck der Gasabdichtung wird im allgemeinen ein Glas-Klebstoff oder ein Glas-Keramik-Verbundklebstoff verwendet.

Bezüglich dieser Klebstoffe jedoch nimmt die Klebfestigkeit zwischen dem dreischichtigen Film und dem Separator ab, da Glas bei der Betriebstemperatur ( $800^\circ\text{C}$ – $1000^\circ\text{C}$ ) erweicht. Somit trennen sich während des Betriebs oder der Temperaturanstiegsperiode der Festelektrolyt-Brennstoffzelle der dreischichtige Film und das Ende des Separators voneinander, und die Fähigkeit, Gas abzuschließen bzw. abzudichten, nimmt ab.

Aus den vorgenannten Gründen besteht Bedarf an einer Festelektrolyt-Brennstoffzelle, die Haftvermögen besitzt, um zu verhindern, daß sich der dreischichtige Film und das Ende des Separators voneinander lösen, und die die Fähigkeit besitzt, Gas während des Betriebs oder der Temperaturanstiegsperiode der Festelektrolyt-Brennstoffzelle abzuschließen.

Die vorliegende Erfindung zielt auf eine Festelektrolyt-Brennstoffzelle, die dem vorgenannten Bedarf gerecht wird. Die Festelektrolyt-Brennstoffzelle umfaßt einen oder mehrere dreischichtige Filme und Separatoren, die alternierend aufeinandergestapelt sind. Jeder der dreischichtigen Filme umfaßt einen Festelektrolytfilm, eine Brennstoffelektrode und eine Luftelektrode, wobei der Festelektrolytfilm zwischen der Brennstoffelektrode und der Luftelektrode liegt. Der dreischichtige Film und der Separator werden mit einem Glas-Klebstoff und einem Keramik-Klebstoff, die getrennt zwischen diesen eingebracht werden, verklebt.

Jeder der Separatoren weist vorzugsweise eine Furche an einem Endbereich davon entlang eines Brennstoffgas- oder Luftkanals dergestalt auf, daß die Furche den Endbereich in einen inneren Bereich und einen äußeren Bereich teilt, und entweder wird der Glas-Klebstoff oder der Keramik-Klebstoff im inneren Bereich des Separators aufgebracht und der andere wird im äußeren Bereich des Separators aufgebracht.

Der dreischichtige Film und der Separator können miteinander verklebt werden, so daß die Luftelektrode dem Separator gegenüberliegt. In diesem Fall wird ein Teil der Luftelektrode vorzugsweise entfernt, so daß der Festelektrolyt an dem Bereich, welcher dem Endbereich entspricht, freiliegt.

Gemäß der vorliegenden Erfindung wird bei der obenstehend beschriebenen Struktur der Glas-Klebstoff zum Gasabdichtung verwendet, und der Keramik-Klebstoff wird zum Verkleben verwendet, und somit fungieren diese unabhängig voneinander. Folglich trennen sich der dreischichtige Film und das Separatorende nicht voneinander, und es kann die Fähigkeit, Gas gut abzuschließen, erhalten werden.

Zudem kann, gemäß der vorliegenden Erfindung, da eine Furche am Ende des Separators vorgesehen ist und der Glas-Klebstoff und der Keramik-Klebstoff durch die Furche isoliert sind, ein Vermischen des Glas-Klebstoffs und des Keramik-Klebstoff verhindert werden. Folglich werden die Gasabdichtungsfunktion des Glas-Klebstoffs und die Klebefunk-

tion des Keramik-Klebstoffs in wirksamer Weise bewerkstelligt.

Folglich werden während des Betriebs und der Temperaturanstiegsperiode der Festelektrolyt-Brennstoffzelle der dreischichtige Film und des Ende des Separators nicht voneinander abgetrennt, und es kann die Fähigkeit zum Abschießen von Gas, um ein Austreten bzw. Lecken Gas zu verhindern, erreicht werden, und somit kann man eine stabile Festelektrolyt-Brennstoffzelle mit ausgezeichneten galvanischen Charakteristika erhalten.

Für den Zweck der Veranschaulichung der Erfindung werden in den Zeichnungen mehrere Formen gezeigt, die gegenwärtig bevorzugt werden, wobei es sich aber versteht, daß die Erfindung nicht auf die gezeigten präzisen Anordnungen und Instrumentierungen beschränkt ist.

Die Fig. 1 ist eine Schnittansicht, die einen Zellenstapel einer Festelektrolyt-Brennstoffzelle Flachtyp zeigt.

Die Fig. 2 ist eine perspektivische Ansicht, die einen Zellenstapel einer Festelektrolyt-Brennstoffzelle vom Flachtyp zeigt.

Die Fig. 3 ist eine Schnittansicht, die den Verklebungszustand zwischen einem dreischichtigen Film und einem Separator gemäß dem ersten Beispiel zeigt.

Die Fig. 4 ist eine Schnittansicht, die den Verklebungszustand zwischen einem dreischichtigen Film und einem Separator gemäß einem zweiten Beispiel zeigt.

Die Fig. 5 ist eine Schnittansicht, die den Verklebungszustand zwischen einem dreischichtigen Film und einem Separator gemäß einem ersten Vergleichsbeispiel zeigt.

Die Fig. 6 ist eine Schnittansicht, die den Verklebungszustand zwischen einem dreischichtigen Film und einem Separator gemäß einem zweiten Vergleichsbeispiel zeigt.

Im folgenden sind die bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung ausführlich unter Bezug auf die Zeichnungen erläutert.

#### Beispiel 1

Die Fig. 3 zeigt eine Schnittansicht einer Zelle 1b eines Festelektrolyt-Brennstoffzellenstapels gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung.

Die Zelle 1b umfaßt einen dreischichtigen Film 2b für einen Erzeugungsbereich und einen Separator 3c. Der dreischichtige Film 2b schließt einen Festelektrolytfilm 5b, eine Brennstoffelektrode 6b und eine Lufterlektrode 4b ein. Die Brennstoffelektrode 6b und die Lufterlektrode 4b werden auf den einander gegenüberliegenden Oberflächen des Festelektrolytfilms 5b gebildet.

Der Separator 3c weist eine Vielzahl von Furchen 8a auf, die sich in einer Richtung auf der Oberfläche davon und den Endbereichen 20, die auf beiden Seiten der Vielzahl von Furchen 8a vorgesehen sind, erstrecken. Die leitfähigen Bereiche 10 in Rillenform sind zwischen den Furchen 8a gebildet. Jeder Endbereich 20 weist eine Furche 9 in Richtung entlang der Furchen 8a auf, wodurch der Endbereich 20 in einen inneren Bereich 20a und einen äußeren Bereich 20b geteilt ist.

Der dreischichtige Film 2b und der Separator 3c werden mit einem Glas-Klebstoff 12, einem Keramik-Klebstoff 13 und einem leitfähigen Perowskitoxid 11 verklebt, die jeweils zwischen dem äußeren Bereich 20b, dem inneren Bereich 20a und dem leitfähigen Bereich 10 des Separators 3c und den entsprechenden Bereichen des dreischichtigen Films 2b aufgebracht sind. In diesem Fall liegt die Lufterlektrode 4b des dreischichtigen Films 2b dem Separator 3c gegenüber, doch ist ein Teil der Lufterlektrode 4b entfernt, so daß der Festelektrolytfilm 5b in der Endbereich 20 des Separators 3c entsprechenden Region freiliegt.

Im folgenden wird ein Verfahren zur Herstellung der Zelle 1b beschrieben.

Zuerst wurde als Festelektrodenfilm 5b ein Dünnsfilm, der aus stabilisiertem  $ZrO_2$ , das 8 Mol-%  $Y_2O_3$  enthält, bestand, in einer Größe von 120 mm×120 mm×0,3 mm hergestellt.

Als nächstes wurde als Material für eine Brennstoffelektrode 6b NiO- und stabilisiertes  $ZrO_2$ -Pulver, das 8 Mol-%  $Y_2O_3$  enthält, hergestellt, und als Material für eine Lufterlektrode 4b wurde (La, Sr)MnO<sub>3</sub>-Pulver hergestellt. Es wurden Elektrodenpasten der Brennstoffelektrode und der Lufterlektrode mit den Elektrodenpulvermaterialien unter Verwendung eines organischen Bindemittels und eines organischen Lösungsmittels hergestellt.

Danach wurde die Brennstoffelektrodenpaste auf eine Oberfläche des Festelektrolytfilms 5b aufgebracht, und die Lufterlektrodenpaste wurde auf die andere Oberfläche durch Siebdruck aufgebracht, und diese wurde unter Bildung einer Brennstoffelektrode 6b und einer Lufterlektrode 4b gebrannt, womit ein dreischichtiger Film 2b erhalten wurde.

Ein Teil der Lufterlektrode 4b wird danach entfernt, so daß der Festelektrolytfilm 5b in der einem Endbereich 20 des Separators 3c, welcher später gebildet wird, entsprechenden Region freiliegt. Dies ist deshalb so, weil der Festelektrolytfilm 5b die besseren Klebecharakteristika mit dem Glas-Klebstoff und dem Keramik-Klebstoff besitzt.

Andererseits wurde (La, Sr)CrO<sub>3</sub>-Keramik für einen Separator 3c verwendet, und es wurden die Furchen 8a als Luftkanal auf einer Oberfläche des Separators 3c vorgesehen, wodurch die Endbereiche 20 auf beiden Seiten der Furchen 8a gebildet werden. Ferner wurde eine Furche 9 entlang dem Luftkanal am Endabschnitt 20 des Separators 3c vorgesehen, welcher mit dem Festelektrolytfilm 5b des dreischichtigen Films 2b in Kontakt kommt, wodurch der Endbereich 20 in einen inneren Bereich 20a und einen äußeren Bereich 20b geteilt wird. Die Furche 9 hat eine Funktion der Isolierung des Glas-Klebstoffs und des Keramik-Klebstoffs voneinander, so daß diese nicht während der Wärmebehandlung zum Verkleben des dreischichtigen Films 2b und des Separators 3c und während des Betriebs der Brennstoffzelle vermischt werden.

Als nächstes werden der dreischichtige Film 2b und der Separator 3c miteinander verbunden. Insbesondere wurde ein leitfähiges Perowskitoxid 11 auf den leitfähigen Bereich 10 durch Siebdruck aufgebracht, um die Lufterlektrode 4b des dreischichtigen Films 2b und den leitfähigen Bereich 10 des Separators 3c zu verbinden. Ferner, um den dreischichtigen Film 2b und das Ende des Separators 3c zu verbinden, wurde ein Perowskit-Keramik-Klebstoff 13 auf den inneren Bereich 20a durch Siebdruck aufgebracht, und eine Aluminiumsilikat-Glas-Verbindungsplatte 12, die durch Wärmebehandlung gebildet worden war, wurde auf den äußeren Bereich 20b aufgetragen. Der dreischichtige Film 2b und der Se-

parator 3c wurden durch Wärmebehandlung unter gleichzeitiger Anlegung einer Drucklast verbunden, so daß die Oberfläche des Separators 3c mit der Furchung 8a zum Zuführen von Luft und die Lufterlektrode des dreischichtigen Films 2b miteinander in Kontakt gebracht wurden, und auf diese Weise wurde die Zelle 1b erzeugt. Wenn der Glas-Klebstoff 12 auf dem äußeren Bereich 20b verteilt wird, wird vorzugsweise die Breite des in der Schnittansicht gezeigten Glas-Klebstoffs 12 verengt, ohne die Gasabdichtfunktion zu beeinträchtigen, so daß der Teil sich nicht von dem dreischichtigen Film 2b infolge eines Verziehhens durch thermische Beanspruchung ablöst.

Als nächstes wurden eine Vielzahl von Zellen 1b aufgebracht, und die benachbarten Zellen wurden miteinander mit einer dazwischenliegenden leitfähigen Filzschicht (nicht in der Zeichnung gezeigt) verbunden. Das bedeutet, die untere Oberfläche des Separators in der einen Zelle und die Oberfläche der Brennstoffelektrode in der anderen Zelle wurden miteinander mit einer dazwischenliegenden leitfähigen Filzschicht verbunden. Die leitfähige Filzschicht hat auch die Funktion des wirksamen Anhäufens der erzeugten Ladungen aus der Brennstoffelektrode durch elektrisches Verbinden einer Brennstoffelektrode und eines Separators.

Ein Zellenstapel (nicht gezeigt in der Zeichnung) wurde wie obenstehend beschrieben zur Herstellung einer Festelektrolyt-Brennstoffzelle aufgebaut. Die Festelektrolyt-Brennstoffzelle wurde in Betrieb genommen, und anhand der galvanischen Charakteristika während des Betriebs wurde nachgewiesen, ob es zu einem Austreten von Gas zwischen dem dreischichtigen Film 2b und dem Ende des in Fig. 3 gezeigten Separators 3c kam oder nicht. Ferner wurde nach dem Betrieb visuell festgestellt, ob der dreischichtige Film 2b und das Ende des Separators 3c sich voneinander getrennt hatten.

## Beispiel 2

Die Fig. 4 ist eine Schnittansicht einer Zelle gemäß einem zweiten Beispiel. Ein dreischichtiger Film 2b, einschließlich einer Lufterlektrode 4b, ein Festelektrolytfilm 5b und eine Brennstoffelektrode 6b sowie einen Separator 3c, wurden in ähnlicher Weise wie in dem ersten Beispiel hergestellt. Um die Lufterlektrode 4b des dreischichtigen Films 2b und einen leitfähigen Bereich 10 des Separators 3c miteinander zu verbinden, wurde das gleiche leitfähige Oxid 11 wie dasjenige in dem ersten Beispiel durch Siebdruck auf den leitfähigen Bereich 10 aufgebracht. Zudem, um den dreischichtigen Film 2b und das Ende des Separators 3c miteinander zu verbinden, wurde der gleiche Keramik-Klebstoff 13 wie derjenige in dem ersten Beispiel durch Siebdruck auf den äußeren Bereich 20b aufgebracht, welcher in dem Endbereich 20 des Separators 3c zuvor erzeugt worden war, und die gleiche Glas-Verbindungsplatte 12, wie diejenige in dem ersten Beispiel, wurde auf den inneren Bereich 20a aufgebracht. Der dreischichtige Film 2b und der Separator 3c wurden durch eine Wärmebehandlung unter gleichzeitiger Anlegung einer Drucklast miteinander verbunden, so daß die Oberfläche des Separators 3c mit einer Furchung 8a für die Zufuhr von Luft und die Lufterlektrode 4b des dreischichtigen Films 2b miteinander in Kontakt gebracht wurden und auf diese Weise eine Zelle 1b hergestellt wurde. Ein Zellenstapel (nicht in der Zeichnung gezeigt) wurde ähnlich wie in dem ersten Beispiel aufgebaut, eine Festelektrolyt-Brennstoffzelle herzustellen.

Die Festelektrolyt-Brennstoffzelle wurde in Betrieb genommen, und anhand der galvanischen Charakteristika während des Betriebs wurde nachgewiesen, ob es zu einem Austreten von Gas zwischen dem dreischichtigen Film 2b und dem Ende des Separators 3c kam oder nicht. Ferner wurde nach dem Betrieb visuell festgestellt, ob der dreischichtige Film 2b und das Ende des Separators 3c sich voneinander getrennt hatten.

## Vergleichsbeispiel 1

Zum Vergleich wurden der dreischichtige Film und der Separator unter Verwendung entweder eines Glas-Klebstoffs oder eines Keramik-Klebstoffs miteinander verbunden. Daher wurde in dem Vergleichsbeispielen keine Furchung zur Verhinderung des Vermischens des Glas-Klebstoffs und des Keramik-Klebstoffs, vorgesehen auf dem Ende des Separators in dem ersten und dem zweiten Beispiel, erzeugt.

Die Fig. 5 ist eine Schnittansicht einer Zelle gemäß einem ersten Vergleichsbeispiel. Ein dreischichtiger Film 2b, einschließlich einer Lufterlektrode 4b, ein Festelektrolytfilm 5b und eine Brennstoffelektrode 6b sowie einen Separator 3c, wurden ähnlich wie in dem ersten Beispiel hergestellt. Um die Lufterlektrode 4b des dreischichtigen Films 2b und einen leitfähigen Bereich 10 des Separators 3c miteinander zu verbinden, wurde das gleiche leitfähige Oxid 11 wie dasjenige in dem ersten Beispiel durch Siebdruck auf den leitfähigen Bereich 10 aufgebracht. Zudem, um den dreischichtigen Film 2b und den Endbereich 20 des Separators 3c miteinander zu verbinden, wurde die gleiche Glas-Verbindungsplatte 12 wie diejenige in dem ersten Beispiel aufgebracht, und der dreischichtige Film 2b und der Separator 3c wurden durch die Wärmebehandlung unter gleichzeitiger Anlegung einer Drucklast miteinander verbunden, und auf diese Weise wurde eine Zelle 1b hergestellt. Ein Zellenstapel (nicht in der Zeichnung gezeigt) wurde in ähnlicher Weise wie in dem ersten Beispiel zur Herstellung einer Festelektrolyt-Brennstoffzelle aufgebaut.

Als nächstes wurde die Festelektrolyt-Brennstoffzelle in Betrieb genommen, und anhand der galvanischen Charakteristika während des Betriebs wurde nachgewiesen, ob es zu einem Austreten von Gas zwischen dem dreischichtigen Film 2b und dem Ende des Separators 3c kam oder nicht. Ferner wurde nach dem Betrieb visuell festgestellt, ob der dreischichtige Film 2b und das Ende des Separators 3c sich voneinander getrennt hatten.

## Vergleichsbeispiel 2

Die Fig. 6 ist eine Schnittansicht einer Zelle gemäß einem zweiten Vergleichsbeispiel. Ein dreischichtiger Film 2b, einschließlich einer Lufterlektrode 4b, ein Festelektrolytfilm 5b und eine Brennstoffelektrode 6b sowie einen Separator 3c, wurden in ähnlicher Weise wie in dem ersten Beispiel hergestellt. Um die Lufterlektrode 4b des dreischichtigen Films 2b und einen leitfähigen Bereich 10 des Separators 3c miteinander zu verbinden, wurde das gleiche leitfähige Oxid 11 wie dasjenige in dem ersten Beispiel durch Siebdruck auf den leitfähigen Bereich 10 aufgebracht. Zudem, um den dreischichtigen Film 2b und den Endbereich 20 des Separators 3c miteinander zu verbinden, wurde der gleiche Keramik-Klebstoff

wie derjenige in dem ersten Beispiel durch Siebdruck aufgebracht, und der dreischichtige Film 2b und der Separator 3c wurden durch Wärmebehandlung zur gleichzeitigen Anlegung einer Drucklast miteinander verbunden, und auf diese Weise wurde eine Zelle 1b hergestellt. Ein Zellenstapel (nicht in der Zeichnung gezeigt) wurde in ähnlicher Weise wie in dem ersten Beispiel zur Herstellung einer Festelektrolyt-Brennstoffzelle aufgebaut.

Als nächstes wurde die Festelektrolyt-Brennstoffzelle in Betrieb genommen, und anhand der galvanischen Charakteristika während des Betriebs wurde nachgewiesen, ob es zu einem Austreten von Gas zwischen dem dreischichtigen Film 2b und dem Ende des Separators 3c kam oder nicht. Ferner wurde nach dem Betrieb visuell festgestellt, ob der dreischichtige Film 2b und das Ende des Separators 3c sich voneinander getrennt hatten.

Die Tabelle 1 zeigt die Ergebnisse der Trennung und des Austretens von Gas zwischen dem dreischichtigen Film und dem Ende des Separators in bezug auf die Beispiele 1 und 2 sowie die Vergleichsbeispiele 1 und 2.

Tabelle 1

Tabelle 1				
	Klebebereich/Material		Kleberesultate	
	Außen	Innen	Trennung	Gas
Beispiel 1	Glas	Keramik	nein	nein
Beispiel 2	Keramik	Glas	nein	nein
Vergleichs- beispiel 1	Glas		festgestellt	festgestellt
Vergleichs- beispiel 2	Keramik		nein	festgestellt

Wie anhand von Tabelle 1 deutlich wird, erfolgte die Gasabdichtung durch den Glas-Klebstoff und das Verkleben durch den Keramik-Klebstoff unabhängig voneinander, da der Glas-Klebstoff und der Keramik-Klebstoff parallel zwischen dem dreischichtigen Film und dem Ende des Separators aufgebracht wurden, um diese in den Beispielen 1 und 2 zusammen zu verkleben. Als ein Ergebnis trennten sich der dreischichtige Film und das Ende des Separators nicht voneinander aufgrund der Klebefunktion des Keramik-Klebstoffs, und es kam zu keinem Austreten von Gas aufgrund der Gasabdichtungsfunktion des Glas-Klebstoffs. Obwohl gemäß diesen Beispielen eine Furche auf dem Ende des Separators vorgesehen wurde, um den Glas-Klebstoff von dem Keramik-Klebstoff zu isolieren, kann der gleiche Vorteile ohne ein Vorsehen einer Furche erzielt werden, wenn der Glas-Klebstoff und der Keramik-Klebstoff parallel mit einem Abstand dazwischen aufgebracht werden, um während des Verklebens nicht miteinander vermischt zu werden.

Demgegenüber war, da der dreischichtige Film und das Ende des Separators mit dem Glas-Klebstoff in Vergleichsbeispiel 1 verbunden wurden, das Haftvermögen schwach. Daher trennten sich der dreischichtige Film und das Ende des Separators voneinander, was zu einem Austreten von Gas führte. In dem Vergleichsbeispiel 2 war, obwohl das Haftvermögen aufgrund der Verwendung des Keramik-Klebstoffs stark war, das Gasabdichtungsvermögen schwach, weil der Glas-Klebstoff nicht verwendet wurde, und dies führte zu einem Austreten von Gas.

Es versteht sich, daß die Festelektrolyt-Brennstoffzelle gemäß der vorliegenden Erfindung nicht auf die obenstehend beschriebenen Beispiele beschränkt ist. Obwohl in den Beispielen der Glas-Klebstoff und der Keramik-Klebstoff parallel zwischen der Lufilektrode des dreischichtigen Films und dem Ende des Separators zum Verkleben aufgebracht wurden, kann der gleiche Vorteil erzielt werden, wenn der Glas-Klebstoff und der Keramik-Klebstoff parallel zwischen der Brennstoffelektrode des dreischichtigen Films und dem Ende des Separators zum Verkleben aufgebracht werden. Es kann jede(r) beliebige herkömmliche Glas- oder Keramik-Klebstoff, Elektrode, Elektrolyt etc. verwendet werden.

Während bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung beschrieben wurden, werden verschiedene Arten der Durchführung der hierin beschriebenen Prinzipien als innerhalb des Umfangs der nachfolgenden Ansprüche liegend in Betracht gezogen. Daher versteht es sich, daß der Umfang der Erfindung nicht in anderer Weise beschränkt sein soll, als es in den Ansprüchen dargelegt ist.

#### Patentansprüche

1. Festelektrolyt-Brennstoffzelle, umfassend:  
einen dreischichtigen Film, umfassend einen Festelektrolytfilm, eine Brennstoffelektrode und eine Lufilektrode, bei der der Festelektrolytfilm zwischen der Brennstoffelektrode und der Lufilektrode liegt;  
einen Separator mit einer Oberfläche, welche an eine Oberfläche des dreischichtigen Films geklebt ist;  
einen Glas-Klebstoff; und  
einen Keramik-Klebstoff;  
wobei der Glas-Klebstoff und die Keramik-Klebstoffe an unterschiedlichen Punkten entlang der gegenüberliegenden Oberflächen des dreischichtigen Films und des Separators verteilt sind.

2. Festelektrolyt-Brennstoffzelle gemäß Anspruch 1, wobei der Separator eine Furche an einem peripheren Bereich davon dergestalt aufweist, dass die Furche den peripheren Bereich in einen inneren Bereich und einen äußeren Bereich teilt und einer von dem Glas-Klebstoff und dem Keramik-Klebstoff an dem inneren Bereich verteilt ist und der andere dem äußeren Bereich verteilt ist.
3. Festelektrolyt-Brennstoffzelle gemäß Anspruch 2, wobei die Lufterlektrode des dreischichtigen Films dem Separator gegenüberliegt und der Festelektrolyt sich jenseits der Lufterlektrode und in den peripheren Bereich hinein erstreckt.
4. Festelektrolyt-Brennstoffzelle gemäß Anspruch 3, wobei der Glas-Klebstoff in dem inneren Bereich verteilt ist.
5. Festelektrolyt-Brennstoffzelle gemäß Anspruch 3, wobei der Keramik-Klebstoff in dem inneren Bereich verteilt ist.
6. Festelektrolyt-Brennstoffzelle gemäß Anspruch 2, wobei der Glas-Klebstoff in dem inneren Bereich verteilt ist.
7. Festelektrolyt-Brennstoffzelle gemäß Anspruch 2, wobei der Keramik-Klebstoff in dem inneren Bereich verteilt ist.
8. Zellenstapel, umfassend mindestens zwei übereinanderliegende Festelektrolyt-Brennstoffzellen gemäß Anspruch 3 und eine dazwischenliegende elektrisch leitfähige Schicht.
9. Zellenstapel gemäß Anspruch 7, bei dem die elektrisch leitfähige Schicht zwischen dem Separator von einer Brennstoffzelle und der Brennstoffelektrode einer zweiten Zelle vorgesehen ist.
10. Zellenstapel gemäß Anspruch 8, wobei der Glas-Klebstoff in dem inneren Bereich verteilt ist.
11. Zellenstapel gemäß Anspruch 8, wobei der Keramik-Klebstoff in dem inneren Bereich verteilt ist.
12. Zellenstapel, umfassend mindestens zwei übereinanderliegende Festelektrolyt-Brennstoffzellen gemäß Anspruch 2 und eine dazwischenliegende elektrisch leitfähige Schicht.
13. Zellenstapel gemäß Anspruch 11, bei dem die elektrisch leitfähige Schicht zwischen dem Separator von einer Brennstoffzelle und der Brennstoffelektrode einer zweiten Zelle vorgesehen ist.
14. Zellenstapel gemäß Anspruch 12, wobei der Glas-Klebstoff in dem inneren Bereich verteilt ist.
15. Zellenstapel gemäß Anspruch 12, wobei der Keramik-Klebstoff in dem inneren Bereich verteilt ist.
16. Zellenstapel, umfassend mindestens zwei übereinanderliegende Festelektrolyt-Brennstoffzellen gemäß Anspruch 1 und eine dazwischenliegende elektrisch leitfähige Schicht.

---

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen

---

FIG. 1

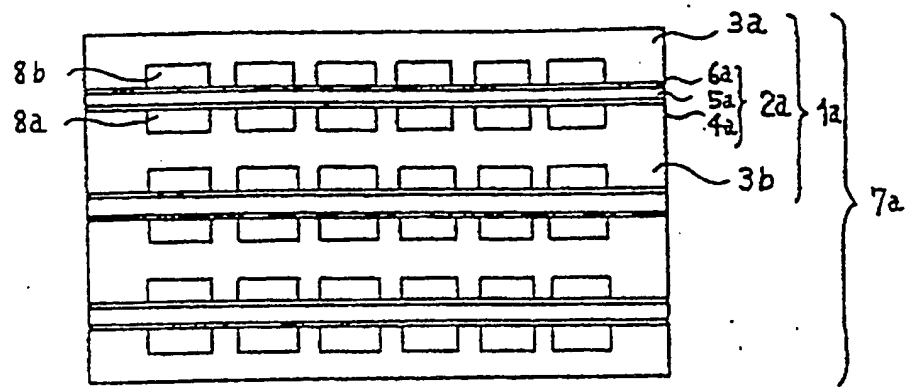


FIG. 2

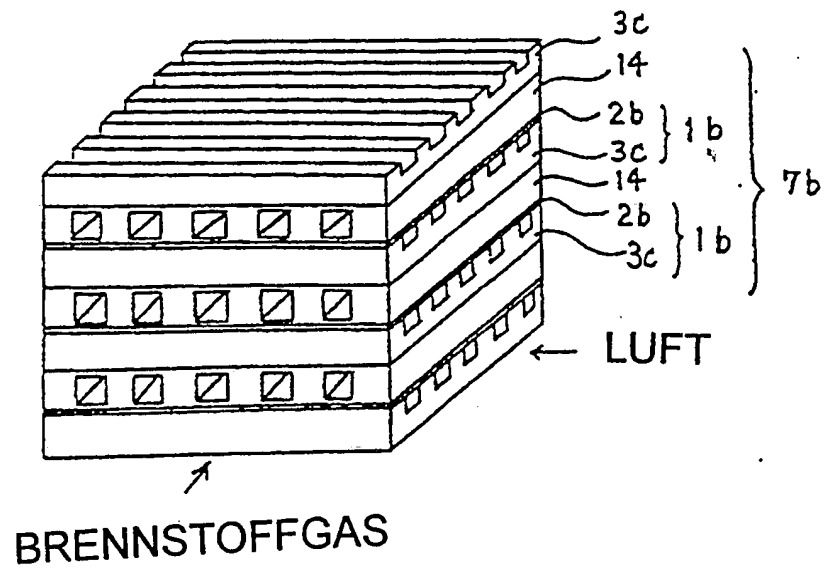




FIG. 3

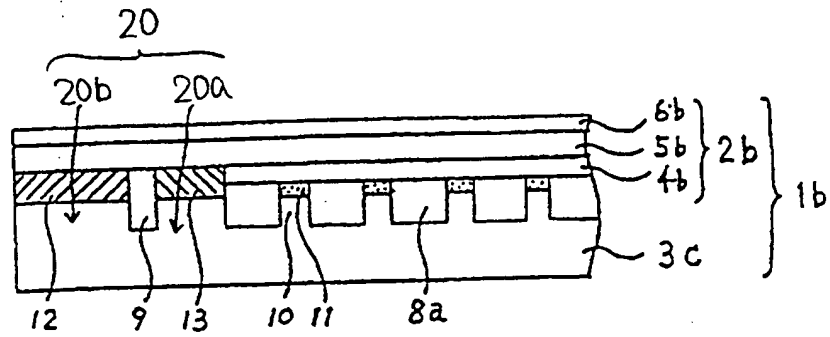


FIG. 4

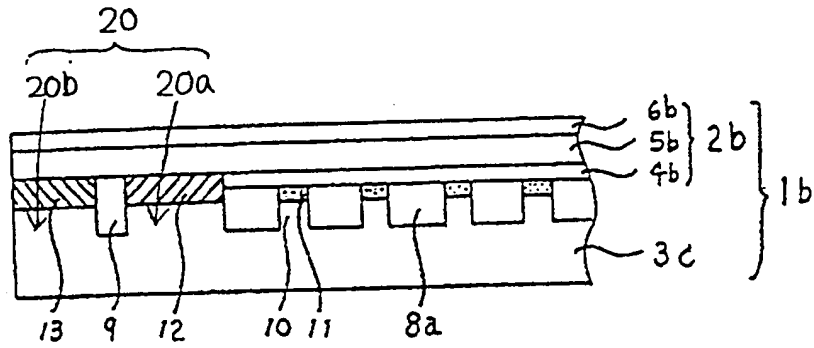


FIG. 5

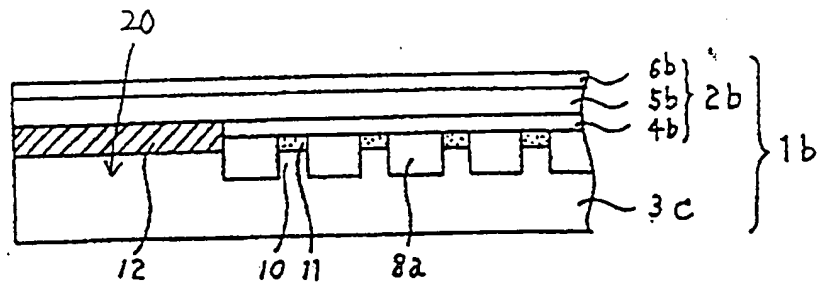
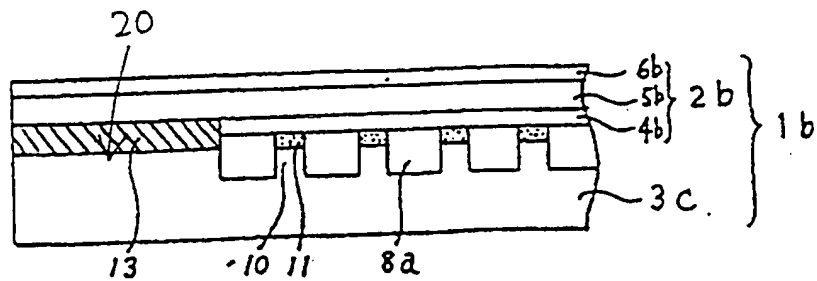


FIG. 6



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**